

В.В. Паращук, К.И. Русаков*, Р.Б. Джаббаров**

Институт физики им. Б.И. Степанова НАНБ, г. Минск

*Брестский государственный технический университет

**Институт физики НАНА, г. Баку

E-mail: v_shchuka@rambler.ru

Исследовано влияние интенсивных электрического и оптического полей, создаваемых стримерным разрядом в широкозонных полупроводниках, на их спектроскопические свойства. Данный эффект проявляется в возникновении обратимой перестройки люминесцентных характеристик активной среды. Предложены методы существенного повышения срока службы и эффективности стримерного лазера при предельных режимах, основанные на использовании полупроводниковых защитных слоев определенной кристаллографической ориентации и кристаллического микрорельефа с размером элементов порядка длины волны света. Обнаружено и изучено стримерное свечение в новых перспективных соединениях $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$, $\text{Ca}_4\text{Ga}_2\text{S}_7:\text{Eu}$.

Введение

Стримерный разряд в полупроводниках является высокоэффективным методом получения лазерного действия в однородных средах при возбуждении короткими импульсами электрического поля [1]. Исследование свойств стримерных разрядов открывает новые возможности для изучения нелинейных оптических, электрических, акустических и других явлений в твердых телах [1, 2]. Длительное время развитие исследований по физике и технике полупроводниковых стримерных лазеров (ПСЛ) тормозилось отсутствием однозначного понимания роли излучательных процессов в формировании стримера, в том числе воздействия сильных оптических и электрических полей, сопровождающих разряд, на активную среду. Кроме того, практическое использование стримерных технологий сдерживалось рядом других причин, среди которых следует отметить деградацию приэлектродной области, су-

щественную в случае предельных режимов работы и обуславливающую относительно невысокие ресурсы и эффективность реальных ПСЛ.

Цель настоящей работы — установление закономерностей воздействия стримерного разряда на активную среду как сложного явления — в условиях интенсивного излучения и сильного электрического поля, разработка методов существенного повышения ресурса и мощности (КПД) лазера при предельных режимах, включая пакетно-импульсный [3], а также поиск новых перспективных активных сред.

Разработка методов улучшения характеристик лазера при предельных режимах эксплуатации

Повышение ресурса, стабильности и некоторых других базовых характеристик стримерного излучения является одной из проблем, которая полностью не решена до настоящего времени и требует учета взаимодействия разряда со средой (обратная

связь) и комплексного характера воздействия вследствие сильных электрических и оптических полей, а также других интенсивных факторов, сопровождающих разряд.

Опыт показывает, что максимальная эффективность стримерного возбуждения достигается при использовании дополнительного разрядного промежутка непосредственно в окружающей среде (диэлектрической жидкости), обостряющего фронт прикладываемого импульса напряжения [1–3]. Методика возбуждения и исследования разрядов приведена в этих же работах: длительность используемого генератора импульсов напряжения составляла ~ 100 нс, эффективная частота следования варьировалась до 10 МГц (пакетно-импульсный режим), амплитуда — до 250 кВ. В этом случае для увеличения срока службы излучающего элемента требуется применение специальных мер его защиты от непосредственного воздействия искрового разряда в жидкости. В качестве одной из таких мер является использование предохраняющего (буферного) материала от воздействия на рабочий кристалл сильного электрического поля и искрового разряда. Одновременно буферный слой не должен препятствовать интенсивной генерации излучения стримеров. Поиск материалов, пригодных для создания предохраняющего слоя осуществлялся среди различных твердых тел — диэлектриков, полупроводников и металлов при различных условиях, среди которых важнейшими являются условия перехода (передачи энергии) разрядов между слоями. В итоге было установлено, что наибольшей эффективностью в указанном смысле характеризуется система, состоящая из рабочего кристалла — пластинки CdS толщиной $\sim 0,5$ мм, ориентированной в плоскости типа $\{0001\}$, и защитного слоя из этого же кристалла толщиной ~ 1 мм, вырезанного в плоскости $\{12\bar{1}0\}$, рис. 1.

В плоскости $\{0001\}$ проекции стримерных треков образуют шестилучевую звезду, что облегчает наблюдения, а во втором (буферном) образце разряды распространяются под некоторыми углами к нормали. Наибольшая длина стримерных треков и интенсивность их свечения наблюдаются при такой геометрии перехода (оптимальные условия), когда пространственная ориентация стримеров в защитном (буферном *а*) и рабочем (*б*) кристаллах практически одинакова. Это соответствует наименьшим потерям энергии при переходе и обеспечивает минимальные разрушения поверхности рабочего тела. Так как плоскости $(10\bar{1}0)$ кристаллов, в которых распространяются стримеры, параллельны, то этим достигается незначительное отклонение стримеров типа e_2 и e_3 в рабочем кристалле от первоначальных в защитном слое. В отличие от стримеров указанного типа переход e_1 затруднен из-за необходимости существенного изменения направления движения на $\sim 90^\circ$. Такой переход разрядов из одного кристалла в другой возможен вследствие близости углов ориентации стримеров к значению $\pm 45^\circ$ относительно оси C .

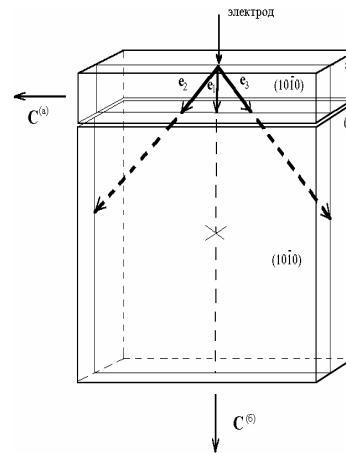


Рис. 1. Схема возбуждения разрядов и взаимная ориентация защитного (буферного) (а) и рабочего (б) кристаллов CdS в импульсно-периодическом режиме

В описанной геометрии возбуждения одиночными импульсами с частотой следования до 50 Гц и амплитудой не более 50 кВ в рабочем кристалле на протяжении, как минимум, 2 ч наблюдалась устойчивая картина стримерных треков без заметного снижения интенсивности свечения, что при прочих равных условиях на 1–2 порядка превышает литературные данные и соответствует $N \sim 10^6$ импульсов. Влияние защитного слоя на интенсивность стримерного излучателя и его ресурс показано на рис. 2.

Следует отметить, что при предельных режимах в защитном материале возникают разрушения в виде глубокого, почти сквозного кратера, тогда как в рабочем кристалле они имеют незначительную глубину проникновения (практически на уровне начальной стадии разрушений). С увеличением количества возбуждающих импульсов до $\sim 10^5$ размеры кратера возрастают и для восстановления начальной энергии излучения необходимо сдвигать игольной электрод от исходного положения на расстояние $\sim 1,0 \dots 1,5$ мм.

Влияние кристаллического микрорельефа на эффективность излучателя при стримерном возбуждении

С целью повышения мощности и КПД ПСЛ изучены условия перехода разрядов между кристаллами для случая, когда в роли рабочего кристалла использовался образец в виде пластины толщиной не более 100 мкм, имеющий одну полированную поверхность с напыленным зеркальным покрытием или без него, а другую — травленную с микрорельефом, элементы которого сравнимы с длиной волны света [4]. При этом поверхностью перехода стримеров служила поверхность микрорельефа, а буферным кристаллом — образец с двумя полированными поверхностями толщиной 1...2 мм, ориентированный указанным выше образом (рис. 3). Резонатор лазера образован поверхностью микрорельефа и противоположной ей поверхностью рабочего кристалла. Опыты проводились также в отсутствие буферного кристалла.

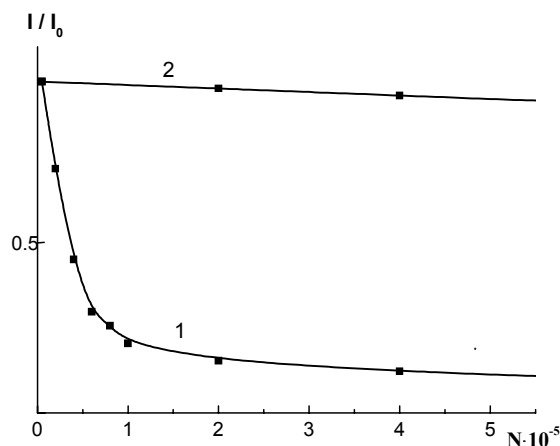


Рис. 2. Сравнительная интенсивность свечения стримерных разрядов в зависимости от экспозиции в отсутствие (1) и при наличии буферного слоя (2)

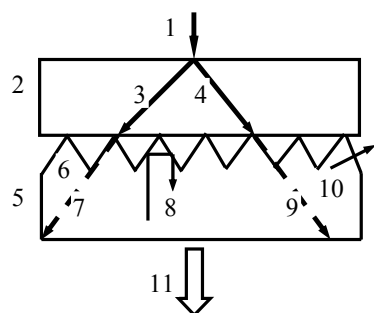


Рис. 3. Схема возбуждения генерации света в лазерной системе при наличии микрорельефа: 1) электрод, 2, 5) буферный и рабочий кристаллы, 6) микрорельеф, 3, 4) разряды в защитном слое, 7, 9) стримеры в рабочем кристалле, 8, 10) отраженные и преломленные лучи на гранях элементов микрорельефа, 11) генерируемый пучок света

На систему подавались пакеты импульсов амплитудой до 200 кВ. Выяснилось, что в случае наличия микрорельефа на поверхности излучателя контакт между кристаллами хуже, чем между полированными поверхностями, что несколько затрудняет переход стримера. Однако указанный недостаток компенсируется значительным усилением стримерного свечения (в 2...3 раза). В отсутствие буферного кристалла интенсивность излучателя дополнительно повышается. О достижении режима генерации света в исследуемой системе свидетельствовало резкое сужение спектра (близкий к одномодовому режим) и возникновение характерной диаграммы направленности излучения с угловой расходимостью $\sim 30^\circ$, типичной для поперечной геометрии стримерного возбуждения в образцах с нанесенными зеркалами (без микрорельефа) [1]. На основании данных [4] можно полагать, что микроструктура на поверхности излучателя приводит к значительному увеличению потерь для неаксиальных мод и повышению эффективности отражения (возврата) излучения (рис. 3, лучи 8) в активную среду, вследствие чего возрастает КПД генерации. При этом положительную роль играет не только вывод (преломле-

ние) неаксиальных мод (10), но и рассеяние соответствующих лучей на гранях элементов микроструктуры. Увеличение мощности выходного излучения обусловлено также повышением степени однородности светового пучка в активной области из-за его рассеяния на рельефе. Разрушения, возникающие на естественных поверхностях фигур травления микрорельефа, прогрессируют медленнее, чем в случае гладкой поверхности. При этом возрастает лучевая прочность такого излучателя и его эффективность в целом. Механизм указанного явления детально исследован на примере полупроводникового лазера с оптической двухфотонной накачкой [4]. Результаты этих исследований были положены в основу разработки мощных полупроводниковых лазеров типа излучающее зеркало, накачиваемых электронным пучком [5], и оказались полезными, как следует из вышесказанного, для увеличения мощности (КПД) и ресурса стримерного лазера.

Взаимодействие стримерного разряда с активной средой лазера

В связи с комплексным воздействием стримерных разрядов представляло интерес выяснить их влияние на спектроскопические (люминесцентные) характеристики активной среды при различных условиях. Использовались образцы в виде плоскопараллельных пластинок толщиной 0,5...1,1 мм, ориентированных в плоскостях (10 $\bar{1}$ 0) так, чтобы поляриная ось была направлена вдоль длинной стороны пластины. Спектры фотолюминесценции (ФЛ) регистрировались с грани образца, через которую выходило излучение стримерных разрядов, возбуждаемых импульсами напряжения амплитудой ~ 50 кВ с частотой следования до 5 Гц. При этом влияние искры, воздействующей на противоположную грань кристалла, устранялось. Люминесценция возбуждалась излучением непрерывного гелий-кадмиевого лазера при $T \approx 300$ К (точнее комнатной температуре) и при температуре жидкого азота ($T \approx 80$ К).

Установлено, что в условиях использовавшегося в качестве диэлектрической среды авиационного керосина при 300 К воздействие на кристалл (экспозиция) $N \sim 5 \cdot 10^3$ разрядов приводит к снижению интенсивности ФЛ примерно в 2 раза по сравнению с начальной интенсивностью — аналогично данным работ [6]. Предпринимались меры по устранению непосредственного влияния излучения лазера. Дальнейшая экспозиция при $N \sim 5 \cdot 10^3$ также сопровождалась уменьшением интенсивности ФЛ. Затем опыты были повторены при 80 К с целью контроля поведения экситонных линий. Особенность поведения этих линий состоит в зависимости их интенсивности от экспозиции, в частности в постепенном ее увеличении в ~ 10 раз при $N = 1,5 \cdot 10^4$ и резком уменьшении после $N = 2,5 \cdot 10^4$. Данный эффект усиления-тушения ФЛ носит обратимый характер, так как воспроизводится после выдержки в течение времени $\tau \sim 24$ ч при 300 К. Соответствующая перестройка спектра ФЛ с ростом экспозиции до $N = 3 \cdot 10^4$ показана на рис. 4.

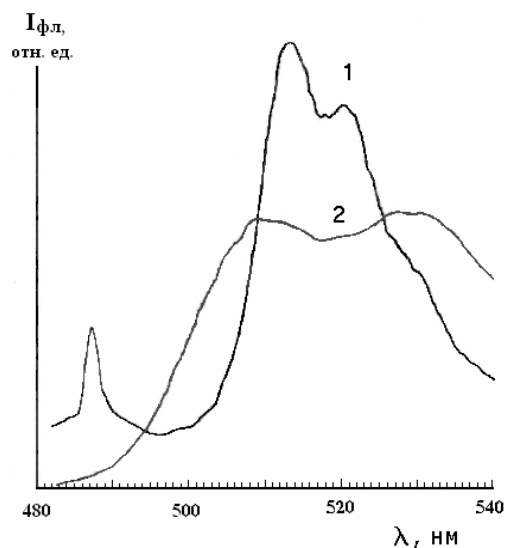


Рис. 4. Спектры ФЛ монокристаллов CdS в зоне воздействия стримерного разряда при экспозиции $N=2,5 \cdot 10^4$ (1) и $3 \cdot 10^4$ (2); $T=80$ К; возбуждение излучением непрерывного лазера ЛГН-409, $\lambda=325$ нм, $P=3$ мВт

Интенсивность «зеленой полосы» уменьшается приблизительно в два раза по сравнению со случаем $N=2,5 \cdot 10^4$, полуширина ее увеличивается, а экситонные линии исчезают, что свидетельствует о сильном изменении состояния поверхности кристалла. Наблюдаемую трансформацию спектра с учетом данных [6] можно объяснить интенсивным разложением приповерхностного слоя с образованием безызлучательных дефектов и комплексов. Вследствие совместного действия сильного электрического поля и мощного излучения разрядов в приповерхностном слое, вероятно, происходит разрушение кристаллической решетки, начинающееся на различного рода дефектах, образованию которых способствуют механические деформации и остаточные напряжения. При этом оказавшиеся на поверхности решетки ионизированные (вследствие высоких уровней возбуждения) атомы исходных компонентов кристалла и примесей могут вступать в химические реакции с окружающей кристалл диэлектрической жидкостью и создавать различные комплексы, приводящие к изменению спектра ФЛ.

При использовании в качестве диэлектрической среды авиационного керосина воздействие искрового разряда и сильного электрического поля приводят к разложению больших органических молекул на мелкие части и образованию различных ассоциатов с дефектами на поверхности кристаллической решетки. Разложение монокристаллов CdS не стимулируется гексаном, этилацетатом и этанолом [7]. Опыты по стримерной накачке в гексане и серном эфире указали на отсутствие перестройки спектра даже при экспозиции $N=3 \cdot 10^4$, что свидетельствует о меньшей интенсивности процессов разложения поверхности сульфида кадмия в этих жидкостях по сравнению с керосином в рассматриваемых условиях. Таким образом, путем выбора окружающей диэлектрической среды представляется возможным

минимизировать влияние указанных факторов с целью улучшения характеристик стримерного лазера.

Поиск новых перспективных активных сред. Стримерное свечение получено и исследовано с участием авторов в ряде бинарных, тройных и более сложных соединений, как хорошо изученных, так и новых (см. обзор [2]): ZnS (длина волны излучения $\lambda \sim 345 \dots 355$ нм), ZnO (~ 400 нм), ZnSe (447...470 нм), ZnTe , CdSe и $\text{CdS}_x\text{Se}_{1-x}$ (610...630 нм), GaAs (~ 830 нм); AgGaS_2 (~ 550 нм), CuGaS_2 , CuGaSe_2 (820...960 нм), $\text{CuGaS}_{2-x}\text{Se}_{2x}$ (700...960 нм). Общий итог этих исследований — стримерные разряды как быстропротекающее явление носят характер кооперативных самоорганизованных процессов [8], в которых оптическим явлениям отводится важнейшая роль. При этом результаты исследования эффективности полупроводникового лазера с использованием микро рельефа при оптической накачке [4] оказались полезными, как отмечалось выше, для увеличения мощности (КПД) и ресурса стримерного лазера.

Ниже остановимся на результатах изучения условий возбуждения, пространственных и оптических свойств разрядов еще в двух интересных средах — кристаллах CaGa_2S_4 и $\text{Ca}_4\text{Ga}_2\text{S}_7$, активированных ионами европия, — представителях широкого класса соединений типа $A_m^{IV}B_n^{III}C_n^{VI}$ ($m=n-3$, $n=4,5,6,\dots$) [9]. Это монокристаллы орторомбической симметрии класса D_{2h}^{24} и кубической сингонии соответственно. Соединения CaGa_2S_4 характеризуются слоистой кристаллической структурой при толщине слоевого пакета $\sim 30 \dots 100$ мкм и являются модельным объектом для исследования закономерностей стримерных разрядов в квазидвухмерных средах. Использование неразрушающих разрядов расширяет возможности изучения реальной структуры кристалла, его электрических и оптических свойств. Кроме того, активированные редкоземельными ионами кристаллы данного класса перспективны для создания высокоэффективных источников дневного света, экранов рентгеновских устройств, цветных дисплеев и других систем отображения информации.

Использовались монокристаллы размером $\sim 5 \times 3 \times 1$ мм с удельным сопротивлением $\sim 10^9 \dots 10^{10}$ Ом·см, выращенные диффузионным методом газотранспортной реакции и методом Бриджмена. Рабочая поверхность образцов получена путем скалывания, разряды возбуждались импульсами напряжения амплитудой ~ 50 кВ длительностью ~ 100 нс через разрядный промежуток в диэлектрической жидкости по стандартной методике и в пакетно-импульсном режиме. Определены оптимальные условия возникновения разрядов при комнатной температуре и температуре жидкого азота в зависимости от геометрии опыта, амплитуды и полярности возбуждающих импульсов. Наблюдались одиночные прямые разряды определенной кристаллографической ориентации; в случае CaGa_2S_4 стримеры локализованы в плоскости слоевого пакета, с выходом основной части светового потока вдоль канала. Переход от $T \approx 300$ к 80 К приводит к заметному увеличению ин-

тенсивности разряда. Образование одиночных разрядов, снижение общего числа стримеров и их типов наблюдалось нами ранее в стержневидных и пластинчатых кристаллах сульфида кадмия [10], а также независимо другими авторами в щелочно-галогидных кристаллах [11]. Данный факт интерпретируется в рамках представлений о взаимодействии электромагнитных волн микроволнового и видимого диапазонов, инициированных стримером [10], и о самоорганизированных процессах при разряде [8].

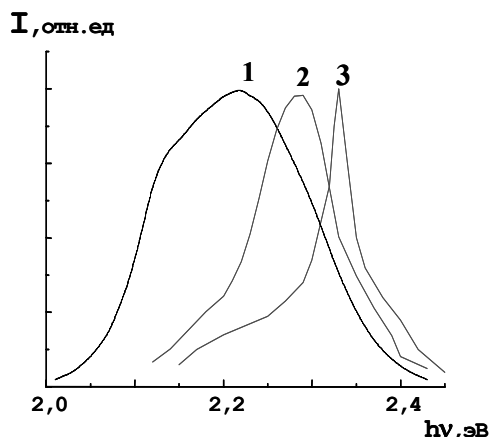


Рис. 5. Спектры: 1) фото- и 2, 3) стримерной люминесценции кристаллов $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$ при $T=300$ (1, 2) и 80 К (3); возбуждение излучением азотного лазера (ЛГИ-21, $\lambda=337,1$ нм, $\tau_{\text{п}} \approx 10$ нс)

Легирование кристаллов CaGa_2S_4 ($\text{Ca}_4\text{Ga}_2\text{S}_7$) многозарядной глубокой примесью Eu приводит к резкому увеличению интенсивности стримерного излучения в желто-зеленой области спектра (рис. 5), что обусловлено вкладом собственных и примесных каналов рекомбинации (включая примесное краевое излучение). При этом наличие люминесценции в области края поглощения и прямоzonность энергетической структуры кристалла являются необходимыми условиями возникновения

стримеров в полупроводниках — в согласии с существующими представлениями. Подобная энергетическая структура обеспечивает высокий квантовый выход излучения, принимающего (по данным [10]) непосредственное участие в формировании разряда. Следует отметить, что слоистым соединениям присущи особенности, обусловленные различием свойств среды в плоскости слоя (двухмерность, взаимодействие слоев и др.) и перпендикулярно ей, которые могут влиять на формирование стримеров.

Заключение

Разработан метод повышения более чем на порядок (до $\sim 10^6$ импульсов) ресурса стримерного лазера при предельных режимах работы, основанный на использовании защитного слоя из однотипного полупроводника с ориентацией, соответствующей минимальным изменениям направлений распространения стримеров на границе перехода защитный слой-излучатель. Установлено, что микро рельеф в виде фигур травления с размером порядка длины волны света на поверхности перехода между защитным кристаллом и активным элементом повышает эффективность излучателя в целом.

Обнаружено влияние стримерных разрядов на люминесцентные свойства полупроводника, проявляющееся в возникновении обратимой перестройки спектра его фотолюминесценции. Спектральные изменения свидетельствуют о возникновении в приповерхностной области комплексов, связанных с дефектами, наличии процессов химического разложения кристалла под действием разрядов. Определены условия минимизации данного явления с целью повышения ресурса и стабильности характеристик стримерного лазера. Обнаружено и изучено стримерное свечение в новых перспективных соединениях $\text{CaGa}_2\text{S}_4:\text{Eu}$, $\text{Ca}_4\text{Ga}_2\text{S}_7:\text{Eu}$ и показано, что закономерности разрядов в слоистых кристаллах аналогичны таковым для квазидвухмерных сред.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Basov N.G., Molchanov A.G., Nasibov A.S., Obidin A.Z., Pechenov A.N., Popov Yu.M. Laser Action in Semiconductor and Dielectrics Excited by the Electric Field // IEEE J. Quantum Electron. — 1974. — V. QE-10. — № 9. — P. 794–796.
2. Грибковский В.П. Стримерное свечение в полупроводниках // Журнал прикладной спектроскопии. — 1984. — Т. 40. — № 5. — С. 709–718.
3. Грибковский В.П., Парашук В.В., Яблонский Г.П. Стримерное возбуждение генерации в высокочастотном режиме // Квантовая электроника. — 1989. — Т. 16. — № 6. — С. 1145–1149.
4. Грибковский В.П., Парашук В.В., Яблонский Г.П. Повышение КПД и мощности полупроводникового лазера с оптической двухфотонной накачкой // Квантовая электроника / Ин-т полупроводников АН УССР. — Киев: Наукова думка, 1990. — № 38. — С. 1–7.
5. Гурский А.Л. Лазеры с возбуждением электронным пучком на основе соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{B}^{\text{V}}$ (Обзор) // Журнал прикладной спектроскопии. — 1999. — Т. 66. — № 5. — С. 601–618.
6. Яблонский Г.П. Образование дефектов решетки в широкозонных полупроводниках A_2B_6 под воздействием излучения азотного лазера // Физика твердого тела. — 1984. — Т. 26. — № 4. — С. 995–101.
7. Яблонский Г.П., Беляева А.К. Фоторазложение полупроводников ZnS , ZnSe и CdS под воздействием УФ-излучения He-Cd-лазера // Физика и химия обработки материалов. — 1989. — № 4. — С. 30–34.
8. Грибковский В.П. Стримеры в полупроводниках — кооперативные самоорганизованные процессы // Доклады АН БССР. — 1985. — Т. 29. — № 10. — С. 896–898.
9. Тагиев Б.Г., Абдуллаев А.Б., Тагиев О.Б. и др. Люминесцентные свойства соединений $\text{A}^{\text{III}}\text{B}_2\text{C}_4^{\text{VI}}$ // Журнал прикладной спектроскопии. — 1995. — Т. 62. — № 3. — С. 145–151.
10. Грибковский В.П., Парашук В.В., Русаков К.И. О кристаллографической ориентации стримерных разрядов // Журнал технической физики. — 1994. — Т. 64. — № 11. — С. 169–171.
11. Миронов А.Л., Зубарев А.И., Шпак В.Г., Быков В.В. Формирование длинных неветвящихся каналов пробоя в щелочно-галогидных кристаллах // Журнал технической физики. — 1990. — Т. 60. — № 11. — С. 203–206.

Поступила 29.05.2006 г.